

(12)特許協力条約に基づいて公開された国際出願

(19) 世界知的所有権機関
国際事務局



(43) 国際公開日
2003 年 4 月 3 日 (03.04.2003)

PCT

(10) 国際公開番号
WO 03/026862 A1

(51) 国際特許分類: B29B 17/00,
C10B 53/00, C10L 5/48, C21B 5/00

(21) 国際出願番号: PCT/JP02/02795

(22) 国際出願日: 2002 年 3 月 22 日 (22.03.2002)

(25) 国際出願の言語: 日本語

(26) 国際公開の言語: 日本語

(30) 優先権データ:
特願2001-288126 2001 年 9 月 21 日 (21.09.2001) JP

(71) 出願人: 新日本製鐵株式会社 (NIPPON STEEL CORPORATION) [JP/JP]; 〒100-8071 東京都千代田区大手町二丁目6番3号 Tokyo (JP).

299-1193 千葉県君津市君津1番地新日本製鐵株式会社君津製鐵所内 Chiba (JP). 小関 常雄 (KOSEKI, Tsuneo); 〒299-1193 千葉県君津市君津1番地新日本製鐵株式会社君津製鐵所内 Chiba (JP). 後藤 裕規 (GOTO, Hiroki); 〒299-1193 千葉県君津市君津1番地新日本製鐵株式会社君津製鐵所内 Chiba (JP).

(74) 代理人: 石田 敬, 外 (ISHIDA, Takashi et al.); 〒105-8423 東京都港区虎ノ門三丁目5番1号虎ノ門37森ビル 青和特許法律事務所 Tokyo (JP).

(81) 指定国 (国内): CN, KR.

(84) 指定国 (広域): ヨーロッパ特許 (AT, BE, CH, CY, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE, TR).

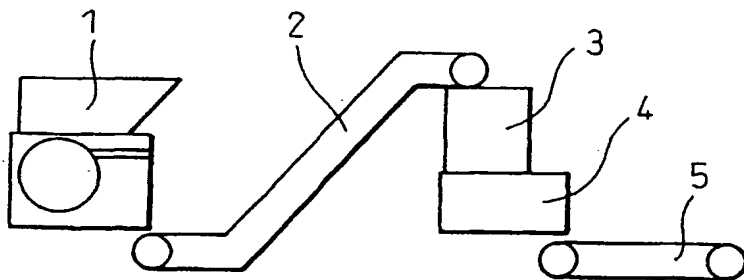
添付公開書類:
— 国際調査報告書

(72) 発明者: 茨城 哲治 (IBARAKI, Tetsuharu); 〒299-1193 千葉県君津市君津1番地新日本製鐵株式会社君津製鐵所内 Chiba (JP). 池田 元樹 (IKEDA, Motoki); 〒

2 文字コード及び他の略語については、定期発行される各PCTガゼットの巻頭に掲載されている「コードと略語のガイダンスノート」を参照。

(54) Title: METHOD OF MANUFACTURING WASTE GRANULATED PLASTICS, AND METHOD FOR THERMAL DECOMPOSITION OF THE PLASTICS

(54) 発明の名称: 廃棄プラスチック粒状化物の製造方法およびその熱分解方法



(57) Abstract: A method of increasing the apparent density and shape quality of the granulated material manufactured by compressingly forming waste plastics for recycling as chemical materials, and a method of economically thermally decomposing the waste granulated plastics, comprising the steps of shredding the waste plastics containing film-shaped plastics of 15 wt.% or more by a shredding machine (1) to manufacture the plastic pieces of a size suitable for a compressingly forming treatment, manufacturing cylindrical granulated material by a compressive forming machine (4) having a through-hole die of 5 to 80 mm in diameter, and thermally decomposing the waste granulated plastics for recycling into chemical materials or thermally decomposing the granulated material in a coke furnace or a blast furnace for recycling.

[続葉有]

WO 03/026862 A1



(57) 要約:

本発明は、化学原料としてリサイクルするために、廃棄プラスチックを圧縮成形して製造した粒状化物の見掛け密度と形状品質を向上させる方法および、廃棄プラスチック粒状化物を経済的に熱分解する方法を提供するものであり、フィルム状プラスチックを15質量%以上含む廃棄プラスチックを破砕機1で破砕することにより、圧縮成形処理に適正なサイズのプラスチック片を製造した後に、これを5～80mmの直径の貫通穴型を有する圧縮式成形機4で、円筒状の粒状化物を製造する。また、この廃棄プラスチック粒状化物を熱分解して、化学原料等にもリサイクルする。また、コークス炉および高炉などで熱分解してリサイクルする。

明 細 書

廃棄プラスチック粒状化物の製造方法およびその熱分解方法

技術分野

本発明は、リサイクルするための事前処理としての廃棄プラスチックを圧縮成形することにより粒状化物を製造する方法に関する技術に関する。また、製造された廃棄プラスチック粒状化物を熱分解により、廃棄プラスチックをガスや油を主体とする物質へ転換する方法にも関する。

背景技術

ポリエチレン、ポリスチレン、塩化ビニル、その他のプラスチックは、成形性と耐久性に優れていることから、容器、包装、家電品の外枠、おもちゃ等の多岐にわたる用途に用いられている。しかし、その結果、廃棄物としても大量に廃棄されている。大量のプラスチック廃棄物が発生することは、社会問題となっており、特に、環境や資源上の問題が大きい。つまり、これらの廃棄プラスチックを焼却する場合は、燃焼温度が上がりすぎて、焼却炉を損傷することや、燃焼の際に有害ガスやダイオキシンを発生する問題がある。また、使用済みプラスチックを埋立処置する場合には、処分場の寿命問題以外に、プラスチックは腐敗しないため、土壌が固化しない問題があった。

したがって、これらの廃棄プラスチックをリサイクルすることは、前述の廃棄物問題点を解決するとともに、省エネルギーと省資源の観点からも有効な手段であることから、種々の方法が実施されている。例えば、材料リサイクルの方法では、ポリエチレンテレフタ

レート of ビンを繊維原料にする方法がある。また、化学リサイクルとしては、水素、一酸化炭素、その他のガスへ転換するガス化法、炭化水素油へ転換する油化法、コークス炉内で、ガス、油化物および炭素を得る熱分解法、高炉に吹き込んでガス化して還元剤として使用する高炉還元法などがある。化学リサイクルは、劣質な廃棄プラスチックでもリサイクルできるとともに、利用用途が広く、天然原料を置換する省資源の観点からも、リサイクル手法としては優れたものである。

廃棄プラスチックを化学原料として、リサイクルするためには、異物を分離した後に粒状化する必要がある。これらの事前処理の方法としては、例えば、特開平 8-99318 号公報に開示されているように、廃棄プラスチックを再利用に適正なサイズに破碎して、これを圧縮成形して、粒状のプラスチック（以下、プラスチック粒状化物と称す）を製造することが一般に行われている。プラスチックを溶融して、粒状化する技術では、溶融のために特殊な装置が必要であり、また、溶融にともない発生するガスなどを処理しなければならない問題があり、圧縮成形法に比べて、処理が高価である。一方、この圧縮成形法では、廃棄プラスチックを比較的低温で圧縮成形するため、処理費用が安価である利点がある。

特に、大量に発生している、家庭から回収された使用済みプラスチック（以下、一般廃棄物プラスチックと称す）の化学原料へのリサイクルには、圧縮成形法が優れている。一般廃棄物プラスチックのリサイクルでは、廃棄プラスチック中の異物を除去した後に、当該廃棄プラスチックを破碎して、穴型から押し出す型式の圧縮成形して、プラスチック粒状化物とする方法は生産性が高く、経済的な方法である。

前述したように、廃棄プラスチックのリサイクルは、環境と資源

の問題に対応する重要な方法である。しかし、廃棄プラスチックを熱分解方法の化学原料としてリサイクルするには、異物を除去した後に、適正なサイズのプラスチック粒状化物を製造する。この際に、適正な事前処理と圧縮成形処理を行って、形状品質が高く、かつ、見掛け密度の高いプラスチック粒状化物を製造する必要がある。粒状化物の形状品質が悪い場合は、プラスチック粒状化物のハンドリング性が悪化することや、形状の不良が原因で、ハンドリングで発生する粉が輸送経路と貯蔵装置に付着するなどの問題が存在していた。つまり、化学原料や燃料用には、形状と密度に関して高品質のプラスチック粒状物が求められている。また、見掛け密度が低いプラスチック粒状物を使用する場合は、重量当りの容積が大きく、搬送装置や備蓄槽が大きくなる問題があるとともに、プラスチック粒状化物内部のプラスチックの結合が悪いために、搬送中に分解してしまったりする問題があった。ここで、分解とは、粒状化物からその一部が粉状となって分離することを言う。

従来技術では、形状と見掛け密度が良好なプラスチック粒状化物を製造する方法として、貫通穴型から押し出す型式の圧縮成形機での処理をする際の工夫がなされていた。例えば、廃棄プラスチックの圧縮成形方法としては、廃棄プラスチックの付着水分と成形温度などを管理することにより、プラスチック粒状化物の形状品質を向上させる方法が示されている。しかしながら、廃棄プラスチックの破碎条件が不良で、成形のための操業に悪い影響を与える場合があった。

つまり、廃棄プラスチックの破碎サイズが大き過ぎる場合は、圧縮成形機内部で、廃棄プラスチックが貫通穴型を通過する際の通過抵抗が大きく、かつ、貫通穴型でプラスチックが偏在する問題が生じて、プラスチック粒状化物が正常に形成されない問題が発生して

いた。その結果、プラスチック粒状化物に空洞ができたり、圧密が不十分であったりして、形状品質が悪くなり、これに起因する問題が発生していた。特に、厚手のプラスチックのサイズが貫通穴型の直径よりも大きい場合は、この問題が顕著であった。

一方、廃棄プラスチックの破碎サイズが細かすぎる場合も、圧縮成形時に問題が生じていた。つまり、破碎の度合いが進みすぎで、廃棄プラスチック破砕片が、貫通穴型の直径よりも小さくなりすぎると、プラスチック粒状化物内部の廃棄プラスチックの絡みつきが不十分になる問題を抱えていた。また、この場合には、貫通穴型を通過する際の抵抗が弱すぎて、十分な圧密が行えない場合もあった。このように、廃棄プラスチック破砕片が、貫通穴型の直径よりも小さくなりすぎると、プラスチック粒状化物の形状が悪くなったり、見掛け密度が不足する問題が生じていた。

また、粒状化物を適切に製造するには、フィルム状プラスチックを適正比率混在していることが有効である。つまり、フィルム状プラスチック、特にポリエチレンは圧縮成形時に摩擦熱で軟化してプラスチック粒状化物のバインダーとして機能する。しかしながら、従来技術では、この事実に必要な注意を払っておらず、この効果も十分に発揮できていなかった。

このように、従来技術においては、プラスチック粒状化物を適正に製造するための十分な知識がなく、形状品質と見掛け密度のバラツキの大きいものしか製造できない問題を抱えていた。したがって、この問題を解決する新しい技術が求められていた。

発明の開示

本発明は、前記問題点に鑑みなされたものであり、その要旨とするところは、以下のとおりである。

(1) 貫通穴型を有する成型装置に廃棄プラスチックを押し込んで成形し、粒状化物を製造する方法において、厚みが0.15mm以下のフィルム状プラスチックを15質量%以上含む廃棄プラスチックを、厚みが0.15mm以下のフィルム状プラスチックの70質量%以上は、その破碎片の最大長さが前記貫通穴型の直径の0.5倍以上に、かつ、厚みが0.15mm超のプラスチックの70質量%以上は、その破碎片の最大長さが前記貫通穴型の直径の1倍以下になるように破碎し、当該破碎済み廃棄プラスチックを直径が5～80mmの前記貫通穴型に押し込んで成形することを特徴とする廃棄プラスチック粒状化物の製造方法。

(2) 前記廃棄プラスチックが、厚みが0.15mm以下のフィルム状のポリエチレンを7質量%以上含み、かつ、該廃棄プラスチックを前記貫通穴型に押し込んで100～140℃の温度範囲で成型することを特徴とする(1)に記載の廃棄プラスチック粒状化物の製造方法。

(3) 前記廃棄プラスチックの一部もしくは全部が、家庭から回収された使用済みの廃棄プラスチックであることを特徴とする(1)に記載の廃棄プラスチック粒状化物の製造方法。

(4) 前記貫通穴型を有する成型装置は、エンドプレートに複数の貫通穴型を有する樽型のプラスチック保持容器と、その内部に設けられたスクリー式押し込み装置とから構成されていることを特徴とする(1)～(3)のいずれか1つに記載の廃棄プラスチック粒状化物の製造方法。

(5) 前記貫通穴型を有する成型装置は、複数の貫通穴型を有する金属板と、ローラー式押し込み装置とから構成されることを特徴とする(1)～(3)の何れか1つに記載の廃棄プラスチック粒状化物の製造方法。

(6) (1)～(3)のいずれか1項に記載の方法で製造された廃

棄プラスチック粒状化物を、混合比率を10容量%以下として平均粒径が5 mm以下の粘結性を有する石炭と混合し、最高到達温度を1000℃以上で乾留することを特徴とする廃棄プラスチック粒状化物の熱分解方法。

(7) 前記乾留が、コークス炉を用いて行われることを特徴とする

(6) に記載の廃棄プラスチック粒状化物の熱分解方法。

(8) 前記廃棄プラスチック粒状化物中に混在する灰分が、8質量%以下であることを特徴とする(6) に記載の廃棄プラスチック粒状化物の熱分解方法。

(9) (1) ~ (3) のいずれか1項に記載の方法で製造された平均粒径が5 ~ 8 mmである廃棄プラスチック粒状化物を、製鉄用高炉に空気と共に吹き込むことを特徴とする廃棄プラスチック粒状化物の熱分解方法。

図面の簡単な説明

図1は本発明の廃棄プラスチックの圧縮成形設備の例であり、その全体フローを示す図である。

図2は、本発明を実施する廃棄プラスチックの圧縮成形機の1例であり、廃棄プラスチックをスクリューで押し込んで、エンドプレート貫通穴型から押し出す型式の装置を示す図である。

図3は、フィルム状プラスチックの混合比率がプラスチック粒状化物の見掛け密度に与える影響を示す図である。

図4は、貫通穴型の径がプラスチック粒状化物の見掛け密度に与える影響を示す図である。

図5は、プラスチック粒状化物の容積比率(対石炭嵩容積)のプラスチック粒状化物歩留(水素・炭化水素・コークス等に回収される比率)に与える影響を示す図である。

発明を実施するための最良の形態

本発明者らは、廃棄プラスチックを圧縮成形することによる化学原料用のプラスチック粒状化物を製造する技術を種々検討して、形状品位が良く、また、見掛け密度の高いプラスチック粒状化物を得る技術を発明した。

本発明に用いた装置の一例である図1に示される装置を用いて、本発明での廃棄プラスチックの圧縮成形法について説明する。図1の装置は、破碎機1、破碎物コンベア2、破碎物貯留槽3、圧縮式成形機4、および冷却コンベア5から構成されるものである。なお、異物混入の多い廃棄プラスチックを原料として用いる場合は、この装置の前段に、異物を選別する工程を設置することが望ましい。

最初の段階で、廃棄プラスチックを破碎機1にて、破碎する。破碎機1は、どの型式のものでも良いが、破碎刃を有する回転軸と固定刃から構成される、1軸式の破碎機で破碎することが効果的である。廃棄プラスチックを破碎した後に、圧縮成形機4の貫通穴型9に破碎されたプラスチック片を押し込んで成形する。図1に示す設備の例では、エンドプレートに複数の貫通穴型を有するプラスチック保持容器とその内部のスクリー式押し込み装置から構成される圧縮成形機を用いた。この圧縮成形機の詳細を図2に示す。すなわち、破碎されたプラスチック片を貫通穴型9に押し込んで成形する。しかし、圧縮式成形機4は、プラスチックの押し込み機構と穴型を有するものであれば、いずれのものでも良い。押し込みローラーで複数の穴型のある円筒側面に廃棄プラスチック片を押し込む型式、これとほぼ同型式で装置の内部で廃棄プラスチックを切断する機構を持ちこの摩擦熱を利用する型式などがある。ただし、家庭などから回収される使用済みの廃棄プラスチックを用いる場合は、金属異物等が多く混在しており、これが原因での穴型詰まりが発生しづら

いスクリー押し込み式のものが望ましい。しかし、異物の混入が少ない場合は、金属板に多数の貫通穴型を設けており、この表面をローラーが回転移動していき、このローラーで貫通穴型から廃棄プラスチックを押し出す型式の圧縮成形機は、粒状化物の密度を高くすることができるため、有効な装置である。通常は、スクリー式圧縮成形機は、直径10～80mmの粒状化物の製造に、また、ローラー式圧縮成形機は、5～30mmの粒状化物の製造に用いられる。

図1の例での圧縮式成形機4では、廃棄プラスチックを100～140℃にして、貫通穴型9に通すことにより、廃棄プラスチックを円柱状のプラスチック粒状化物に製造する。この粒状化物は温度が高いため、冷却コンベア5で冷却する。圧縮式成形機4の内部では、押し込み時の機械的な仕事により摩擦熱を生じさせて、廃棄プラスチックの温度を上げる。破碎された廃棄プラスチックは、胴部6の内部でスクリー7にてエンドプレート8方向に押し込まれる。これがエンドプレート8に設置してある複数の貫通穴型9から押し出され、切断されて、粒状化物となる。

以下に、見掛け密度が高く、かつ、分解の少ない品質形状の良いプラスチック粒状化物の製造方法を説明する。基本的には、圧縮時にフィルム状プラスチックをバインダーとして機能させるとともに、廃棄プラスチック切断片の大きさを適正にコントロールして、高い見掛け密度で、形状品質の良いプラスチック粒状化物を製造する。

原料の廃棄プラスチックにフィルム状のものが混在していることが成形に望ましい。フィルム状プラスチックはプラスチック粒状化物内のバインダーとしての機能が大きいことが理由である。圧縮式成形機4の内部では、圧縮される際にプラスチック集合体に流れが生じて、混合が起きる。この時にフィルム状のプラスチックは、よ

く伸びるとともに変形して、厚手プラスチックの間に入り込み、空隙を埋めることから、比較的厚手のプラスチックを接着する効果がある。

本発明者らは、フィルム状プラスチックの適正な混合比率を調査した。圧縮成形条件としては、成形温度 110℃で、その他の条件を同一にして処置した。この結果を図 3 に示す。フィルム状プラスチックの混合比率が10質量%程度から、プラスチック粒状化物の見掛け密度が上がりだし、混合比率が15質量%を超えた場合は見掛け比重が0.55kg/リットル以上と良好な密度となっていた。また、このプラスチック粒状化物を1 m落下させた時の粉化率を調査したところ、やはり、フィルム状プラスチックの混合比率が15質量%以上では、粉化率が5%以下と低く良好な結果であった。つまり、本発明者らは、フィルム状プラスチックの混合比率が15質量%以上であることが、見掛け密度が高く、粉化の少ない形状品質の良いプラスチック粒状化物を製造するための重要な条件であることを解明した。ここで、フィルム状プラスチックとは、厚みが0.15mm以下のシート状のプラスチックである。また、見掛け密度とは、プラスチック粒状化物の質量を内部空隙も含んだ容積で割った数値である。

なお、1 m落下時の粉化率とは、粒状化物を1 mの高さから落下させた後、目開きが3 mmの篩で篩った時の3 mm未満の粒状化物の質量の落下前の全粒状化物の質量に対する比率（質量%）を示すものである。

また、特に、ポリエチレンは 100℃前後で軟化して、密着性も良いことから、プラスチック粒状化物の見掛け密度を高め、かつ、形状品質を向上させるために重要なプラスチックである。密度や分解の点で良好な成績を得るには、ある比率でフィルム状ポリエチレンが廃棄プラスチック中に混在していることが望ましい。本発明者ら

が行った実験の結果では、0.15mm以下の厚みのフィルム状ポリエチレンが7質量%以上存在していると、分解が少なく、かつ、見掛け密度の高いプラスチック粒状化物を容易に製造できた。このフィルム状ポリエチレンの混合比率では成形温度が100～140℃の範囲であることが望ましい。また、適正温度の詳細な値は、フィルム状ポリエチレンの混合比率や厚手プラスチック比率で異なるが、通常の組成の廃棄プラスチックを成形する場合は、上記の温度範囲の中である。たとえば、フィルム状ポリエチレンの混合比率が高い場合は、100℃前後の比較的低温で、また、厚手プラスチックの比率が高い場合は、120～140℃の比較的高温で圧縮成形することが望ましい。

操業のための廃棄プラスチックに関わる、もう一つの重要な条件は、破碎後のプラスチックのサイズである。破碎済みプラスチックのサイズが、破碎片の最大長さが圧縮式成形機4の穴型直径の0.5倍以上である、フィルム状プラスチックが、70質量%以上、かつ、破碎片の最大長さが穴型直径の1倍以下である、厚みが0.15mm超のプラスチック（以降、厚手プラスチックと称す）が70質量%以上であることが必要である。

厚手プラスチックは、圧縮式成形機4の貫通穴型9の手前および内部での変形が小さいため、厚手プラスチックのうちで貫通穴型9の直径よりも大きいものが多いと、押し込み抵抗が大きくなり、生産性が低下する。また、この場合は、プラスチックの押し込み不良による貫通穴型9の閉塞が生ずることがある。厚手プラスチックの最大長さが貫通穴型9の直径よりも大きいものの比率が30質量%を越えると、貫通穴型9の閉塞の比率が大幅に増加した。また、この条件では、プラスチック粒状化物の分解も多かった。これは、大きな厚手プラスチックが穴型の直径方向にわたって充満し、かつ軸方

向に連なるように存在してしまい、フィルム状プラスチックのバインダーの機能を阻害することが原因であった。

圧縮成形時に、フィルム状プラスチックのサイズが小さすぎる場合には、厚手プラスチックを接着するために必要な長さに満たないため、バインダー効果が減少する。したがって、ある程度以上の大きさのフィルム状プラスチックが混在していることが必要である。本発明者等は、種々の実験を繰り返して、貫通穴型 9 の直径の 1/2 よりも大きいフィルム状プラスチックの比率が 70% を越えるとプラスチック粒状化物の密着性が向上することを解明した。

本発明者らは、以上に説明した効果を十分に発揮するためには、貫通穴型 9 の直径に適正な範囲があることを解明した。つまり、貫通穴型 9 の直径が大き過ぎると、穴内面の摩擦熱が粒状化物内部まで十分に伝達されないことが判明した。この実験結果を示す図 4 に認められる様に、穴型直径が 80mm を超えると、プラスチック粒状化物の密着状態が悪化して、見掛け密度が低下し、また、1 m 落下時の粉化率が上昇する。したがって、貫通穴型の 9 直径は 80mm 以下であることが有効である。

一方、貫通穴型 9 の直径が小さ過ぎると、廃棄プラスチックに混在する小さい異物が原因の穴型閉塞が起きやすくなる。元々が廃棄物である廃棄プラスチックには、異物が混在することが一般的である。このうち、小さい異物は磁力選別機などの選別装置では除去しづらく、事前の異物除去を徹底しても、破碎後の廃棄プラスチックに、5～10mm 程度の長さの金属線やガラス片などの異物が少量ながら混在する。この問題は、一般家庭から排出される廃棄プラスチックの処理を行なう場合には顕著になる。

この小さい異物が圧縮成形機 4 の貫通穴型 9 に詰まり、操業を阻害する要因となる。貫通穴型 9 の直径が小さくなるにつれて、異物

詰まり起因の貫通穴型 9 の閉塞の頻度が増加する。穴型直径が10mm以下となると閉塞の頻度が増加し始め、直径が5mm未満となると稼動時間10時間で35%の貫通穴型 9 が閉塞して、作業が継続できない問題が発生する。したがって、貫通穴型 9 の直径は、5～80mmの範囲が重要な条件である。

以上の方法で製造したプラスチック粒状化物を化学原料として利用する。利用工程では、見掛け密度が高く、分解の少ない粒状化物は、ハンドリング特性が良く、かつ、粉が搬送装置や備蓄槽に付着する問題がなく、また、反応槽の充填率が高くなることから、生産性が向上するなどの利点がある。

化学原料として使用する方法としては、無酸素状態で加熱し、熱分解して、水素、メタン、高級炭化水素、ベンゼン、その他の物質を得る方法と、酸素が存在する状態で熱分解することにより、一酸化炭素、二酸化炭素、水素、その他のガスを得る方法があり、良質の原料油や原料ガスが採取できることから、有効な手段である。

更に、熱分解方法の内、無酸素状態での熱分解方法としては、石炭と共に乾留する方法と、金属製の反応容器内で加熱して熱分解する方法とがある。また、酸素が存在する状態で熱分解する方法の内、工業的に有効な方法としては、金属製や耐火物製の反応容器の内部で、酸素と反応させる方法、および、空気と共に高炉に吹込んで、水素と一酸化炭素に分解して、鉱石の還元を用いる方法がある。

石炭と混合して乾留する方法は、廃棄プラスチックの熱分解方法として特に優れた方法である。無酸素状態でプラスチックを熱分解すると、水素や炭化水素分子が生成するが、乾留の残分として、炭素を中心とする残渣が残る。しかし、粘結性のある石炭と混合して乾留すると、400℃前後で軟化した乾留中の石炭に、この残さが吸着されて、コークスの一部となる。

また、この時、最終的には、乾留温度を1000℃以上とすることが必要である。この理由としては、400℃前後で石炭に吸着された残渣が石炭と強固な結合を作るためには、1000℃以上の高温で、乾留を完了することが重要である。したがって、1000℃以上の温度で、2時間以上乾留することにより、廃棄プラスチックの残渣を含んでも強度の高いコークスを製造できる。

このコークスは燃料や還元剤として有効利用できることから、利用できない部分の少ない、歩留の高いリサイクルが可能となる。この方法は、既存のコークス炉を用いて行なうことにより、設備費や操業費を低減することができることから、有効な方法である。

この石炭と混合して乾留する熱分解方法では、本発明の方法で製造したプラスチック粒状化物を用いると、効率的な処理ができる。つまり、本発明の方法で製造した粒状化物の見掛け密度は0.5～0.8 kg/リットルと高いことから、乾留装置の反応容積を有効に使える効果がある。この効果以外にも、乾留後の炭素を含む残渣の密度が比較的高いため、この残渣が軟化した石炭に有効に吸着される効果がある。この効果は、見掛け密度が高いプラスチック粒状化物ほど大きくなる。したがって、本発明で製造されたプラスチック粒状化物を用いた場合は、残渣として歩留落ちするものの比率が少ない効果がある。

本発明者らは、更に、種々の実験を重ねて、軟化した石炭に残渣を効率的に吸着させるためには、石炭の平均粒径が5 mm以下であることと、プラスチック粒状化物が石炭にくるまれるように混合されることが重要であることを解明した。このことが理由で、本発明者らは、図5に示すとおり、プラスチック粒状化物の容積を石炭の容積の10%以下の比率で混合することが有効な手段であることを解明した。

一方、従来法で製造したプラスチック粒状化物では、粉が混在していることと、見掛け密度が0.3 ～0.5 kg/リットルと低いことから、残渣が石炭の軟化部分に吸着される量が減少する。このように、本発明を適用して製造したプラスチック粒状化物を石炭と混合して乾留する方法は、従来法で製造したものを用いる方法に対して、リサイクルされない残渣が少なく、歩留が高い効果がある。

本明細書で言う歩留とは、水素、炭化水素などとして回収されるほか、コークス、石炭などに吸着されて回収された廃棄プラスチック粒状化物の合計質量の、熱分解に供した廃棄プラスチック粒状化物の全質量に対する比率（質量%）を意味する。

本発明者らは、廃棄プラスチック粒状化物に混在する無機物も熱分解時に悪影響を与えることを解明した。無機物（いわゆる灰分）は、軟化した石炭と接合性が悪いため、灰分の多い粒状化物では、コークスに吸着されない残渣分が多くなる。本発明者らの実験では、灰分が8質量%以上では、急激に残渣の吸着が悪化することを見いだした。粒状化物の灰分が8質量%以下であることが好ましい。

また、反応容器内部で、酸素と反応させる方法や空気と共に高炉に吹込んで水素と一酸化炭素を得て鉱石還元を用いる方法においては、ガスや空気とともに反応容器や高炉に供給することから、気流搬送時に、プラスチック粒状化物はバラバラになることがある。この場合は、粉化したプラスチックは配管内部や吹き込み装置内部に付着して、種々の設備トラブルを誘発する。しかしながら、本発明を用いて製造したプラスチック粒状化物を用いると、上記の問題が起きにくくなる。

高炉に吹き込んで還元を用いる方法では、炉内への吹き込み羽口での閉塞を防止することから、プラスチック粒状化物の直径は5 ～8 mmの範囲であることが重要である。つまり、8 mm以上のプラスチ

ック粒状化物では、大き過ぎて、羽口の周辺で閉塞を起こすことが原因となるため、最大径を上記のように規制する必要がある。

実施例

本発明に基づいて、廃棄プラスチックを圧縮成形した結果を以下に示す。本発明の方法により、従来法と比較して、良好な形状品質を有する化学原料用のプラスチック粒状物を製造することができた。図1に示される廃棄プラスチックの圧縮成形設備において、図2に示されるスクリュウ押し込み式の圧縮成形機を用いて、20mmの粒状物を製造する際に、本発明の条件に従った操業による製造結果を用いて、本発明の効果を説明する。また、比較例として、本発明の条件を逸脱した操業条件で製造したプラスチック粒状化物の成績も述べる。

実施例1と2では、厚みが0.15mm以下のフィルム状プラスチックの比率が22質量%、フィルム状ポリエチレンが10質量%の比率で混在している廃棄プラスチックを処理した。破砕機1の出口のスクリーンは25mmの網目であった。この結果、圧縮式成形機4に供給された廃棄プラスチックのサイズは以下のとおりであった。フィルム状プラスチックの77%が穴型直径の0.5倍(10mm)以上、かつ、厚みが0.15mm以上の厚手のプラスチックの81%が穴型直径の1.0倍(20mm)以下であった。

この破砕済みプラスチックを115℃で圧縮成形した。その結果、見掛け密度が0.72kg/リットルで、かつ、1m落下時の粉化率が2.5%の良質のプラスチック粒状化物が得られた。このように、本発明を用いた操業においては、粉化の少ない、また、密度も高いプラスチック粒状化物を製造できた。

比較例1として、実施例と同様に、フィルム状プラスチックが22

質量%の比率で混在している廃棄プラスチックを処理した。なお、破砕機 1 の出側スクリーンの網目は12mmであった。この結果、20mmの貫通穴型直径の圧縮式成形機 4 に供給された廃棄プラスチックのサイズは以下のとおりであった。フィルム状プラスチックの26%が穴型直径の 0.5倍以上、かつ、厚手プラスチックの99%が穴型直径の 1.0倍以下であった。

この破砕済みの廃棄プラスチックを 110℃で圧縮成形した。その結果プラスチック粒状化物の見掛け密度は0.42kg/リットルで、かつ、1 m 落下時の粉化率が11.7%であった。このように、本発明の範囲を逸脱した操業条件では、見掛け密度が低く、また、粉化しやすいものであった。

比較例 2 として、フィルム状プラスチックが12質量%の比率でしか混在していない廃棄プラスチックを処理した。なお、破砕機 1 の出側スクリーンの網目は25mmであった。この結果、圧縮式成形機 4 に供給された廃棄プラスチックのサイズは以下のとおりであった。フィルム状プラスチックの73%が穴型直径の 0.5倍以上、かつ、厚手プラスチックの78%が穴型直径の 1.0倍以下であった。

この破砕済みの廃棄プラスチックを110℃で圧縮成形した。その結果プラスチック粒状化物の見掛け密度は0.40kg/リットルで、かつ、1 m 落下時の粉化率が12.1%であった。この例でも、本発明の範囲を逸脱した操業条件では、見掛け密度が低く、また、粉化しやすいものであった。

実施例 1 と 2、および、比較例 1 の操業を行なって製造したプラスチック粒状化物を、粘結性のある 3.3mm平均粒径の石炭と混合して、高温で熱分解（乾留）した。熱分解装置としては、コークス炉を用いた。石炭への混合比率は、4.2質量%で、プラスチック粒状化物容積は石炭嵩容積に対して 8.8%であった。この状態で、最高

温度1120℃で、17時間をかけて、乾留を行なった。

実施例1と2の操業で得られたプラスチック粒状化物を上述の条件で乾留した結果、水素、メタン、高級炭化水素、ベンゼン、その他を回収でき、かつ、残渣のほとんど全部がコークスに吸着されていた。この結果、プラスチック粒状化物の歩留は、99.2%であった。

一方、比較例1で製造した、上記のプラスチック粒状化物を同様の条件で乾留した。この結果、原料であるプラスチック粒状化物の約6質量%の残渣がコークスに吸着されずに残っていることが認められた。この残渣は不純物等が多く含まれるため、有効利用できなかった。つまり、この条件では、プラスチック粒状化物の歩留は、94%であった。ちなみに、石炭と混合しない、油化法などの熱分解方法では、プラスチック粒状化物の歩留は、約80%である。

実施例3では、実施例1で用いた廃棄プラスチックを原料として、直径が6mmの粒状化物を製造した。破砕機1の出口のスクリーンは5mmの網目であった。この結果、圧縮式成形機4に供給された廃棄プラスチックのサイズは以下のとおりであった。フィルム状プラスチックの88%が穴型直径の0.5倍(3mm)以上、かつ、厚手プラスチックの92%が穴型直径の1.0倍(6mm)以下であった。

この破砕された廃棄プラスチックを120℃で成形した。その結果、粒状化物の見掛け密度は、0.65kg/リットルで、かつ、1mm以下の粉化率も3%と良好な形状のものであった。なお、1mm以下の粉化率とは、粒状化物を目開が1mmの篩で篩った時の1mm未満の粒状化物の質量の篩い前の全粒状化物の質量に対する比率(質量%)を示すものである。この粒状化物を空気とともに高炉羽口から吹き込んだところ、吹き込み配管の詰まりもなく、順調に吹き込みができた。この結果、この廃棄プラスチックの粒状化物を2000℃程度の高

温で熱分解して、一酸化炭素と水素を作り、高炉炉内で鉄鉱石の還元の有効利用できた。

このように、本発明を用いた操業では、見掛け比重が大きく、かつ、分解の少ないプラスチック粒状化物を製造することができた。また、このプラスチック粒状化物を高効率で熱分解することができた。

産業上の利用可能性

本発明は、見掛け密度が高く、分解の少ない形状品質の良い廃棄プラスチックの粒状物を製造する方法を提供するものである。本発明を用いることにより、熱分解原料用に適したプラスチック粒状化物を可能とする。その結果、廃棄プラスチックをガス化装置、油化装置、コークス炉、高炉、その他の反応装置の原料として使用できる。また、コークス炉や高炉などで、経済的に熱分解して、リサイクルすることができる。

請 求 の 範 囲

1. 貫通穴型を有する成型装置に廃棄プラスチックを押し込んで成形し、粒状化物を製造する方法において、厚みが0.15mm以下のフィルム状プラスチックを15質量%以上含む廃棄プラスチックを、厚みが0.15mm以下のフィルム状プラスチックの70質量%以上は、その破碎片の最大長さが前記貫通穴型の直径の0.5倍以上に、かつ、厚みが0.15mm超のプラスチックの70質量%以上は、その破碎片の最大長さが前記貫通穴型の直径の1倍以下になるように破砕し、当該破砕済み廃棄プラスチックを直径が5～80mmの前記貫通穴型に押し込んで成形することを特徴とする廃棄プラスチック粒状化物の製造方法。

2. 前記廃棄プラスチックが、厚みが0.15mm以下のフィルム状のポリエチレンを7質量%以上含み、かつ、該廃棄プラスチックを前記貫通穴型に押し込んで100～140℃の温度範囲で成型することを特徴とする請求の範囲第1項に記載の廃棄プラスチック粒状化物の製造方法。

3. 前記廃棄プラスチックの一部もしくは全部が、家庭から回収された使用済みの廃棄プラスチックであることを特徴とする請求の範囲第1項に記載の廃棄プラスチック粒状化物の製造方法。

4. 前記貫通穴型を有する成型装置は、エンドプレートに複数の貫通穴型を有する樽型のプラスチック保持容器と、その内部に設けられたスクリー式押し込み装置とから構成されていることを特徴とする請求の範囲第1項～第3項のいずれか1項に記載の廃棄プラスチック粒状化物の製造方法。

5. 前記貫通穴型を有する成型装置は、複数の貫通穴型を有する金属板と、ローラー式押し込み装置とから構成されることを特徴と

する請求の範囲第1項～第3項の何れか1項に記載の廃棄プラスチック粒状化物の製造方法。

6. 請求の範囲第1項～第3項のいずれか1項に記載の方法で製造された廃棄プラスチック粒状化物を、混合比率を10容量%以下として平均粒径が5 mm以下の粘結性を有する石炭と混合し、最高到達温度を1000℃以上で乾留することを特徴とする廃棄プラスチック粒状化物の熱分解方法。

7. 前記乾留が、コークス炉を用いて行われることを特徴とする請求の範囲第6項に記載の廃棄プラスチック粒状化物の熱分解方法。

8. 前記廃棄プラスチック粒状化物中に混在する灰分が、8質量%以下であることを特徴とする請求の範囲第6項に記載の廃棄プラスチック粒状化物の熱分解方法。

9. 請求の範囲第1項～第3項のいずれか1項に記載の方法で製造された平均径が5～8 mmである廃棄プラスチック粒状化物を、製鉄用高炉に空気と共に吹き込むことを特徴とする廃棄プラスチック粒状化物の熱分解方法。

Fig.1

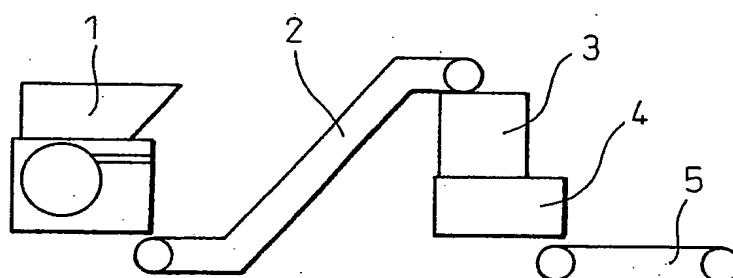


Fig.2

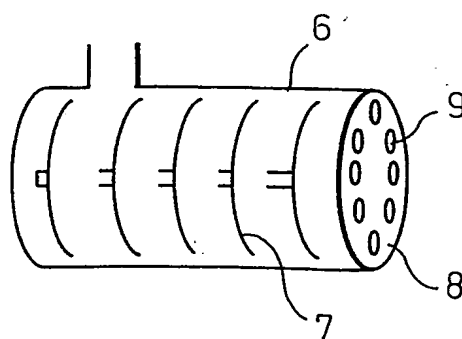


Fig.3

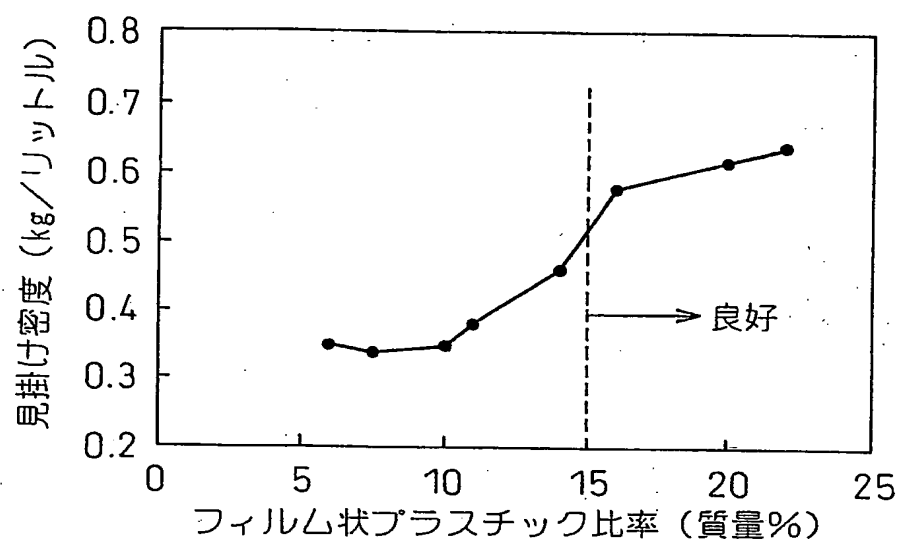


Fig.4

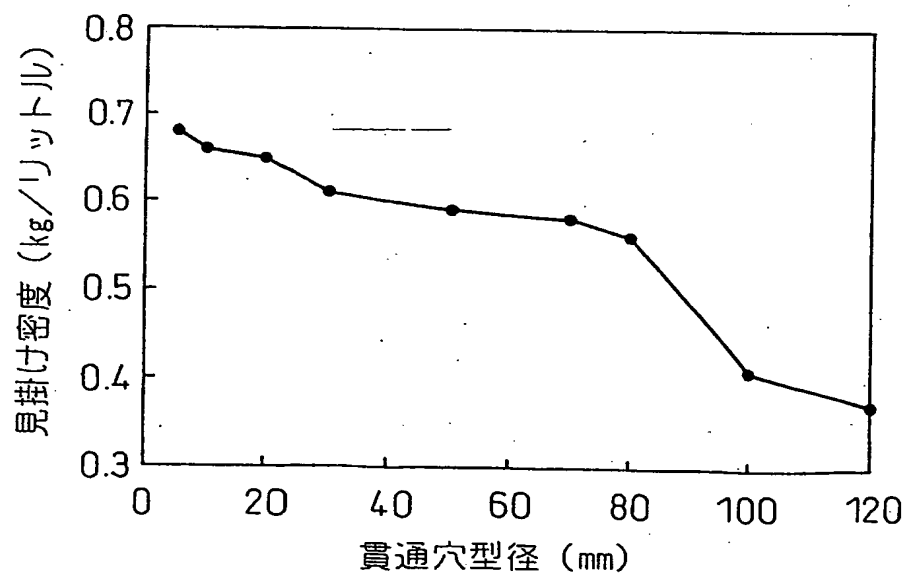
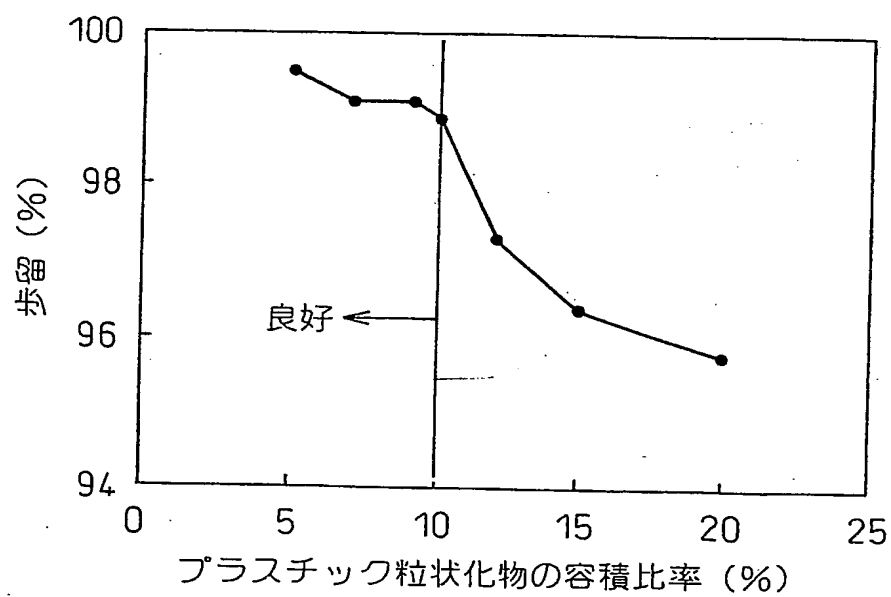


Fig.5



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP02/02795

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

Int.Cl⁷ B29B17/00, C10B53/00, C10L5/48, C21B5/00

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

Int.Cl⁷ B29B17/00, B09B3/00-5/00, C10B53/00, C10B57/04,
C10L5/46-5/48, C21B5/00

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Jitsuyo Shinan Koho	1922-1996	Jitsuyo Shinan Toroku Koho	1996-2002
Kokai Jitsuyo Shinan Koho	1971-2002	Toroku Jitsuyo Shinan Koho	1994-2002

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X Y	JP 2001-232634 A (Nippon Steel Corp.), 28 August, 2001 (28.08.01), Full text; Figs. 1 to 2 (Family: none)	1-5, 9 6-8
Y	JP 2001-49261 A (Nippon Steel Corp.), 20 February, 2001 (20.02.01), Full text; Fig. 4 (Family: none)	6-8
P, X	JP 2001-341131 A (NKK Corp.), 11 December, 2001 (11.12.01), Full text; Figs. 1 to 5 (Family: none)	1-5, 9

☒ Further documents are listed in the continuation of Box C.☐ See patent family annex.

* Special categories of cited documents:

"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance

"E" earlier document but published on or after the international filing date

"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)

"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means

"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention

"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone

"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art

"&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search
12 June, 2002 (12.06.02)Date of mailing of the international search report
25 June, 2002 (25.06.02)Name and mailing address of the ISA/
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

Form PCT/ISA/210 (second sheet) (July 1998)

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP02/02795

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	WO 95/17527 A1 (Klockner Stahl GmbH), 29 June, 1995 (29.06.95), Claims 1 to 4 & US 5772727 A & JP 8-507105 A	1-5, 9
A	EP 1083212 A1 (DSM N.V.), 14 March, 2001 (14.03.01), Full text & NL 1013007 C & JP 2001-172655 A	1-5, 9
A	JP 2000-198992 A (NKK Corp.), 18 July, 2000 (18.07.00), Full text (Family: none)	1-5, 9

Form PCT/ISA/210 (continuation of second sheet) (July 1998)

A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl⁷

B29B17/00, C10B53/00, C10L5/48, C21B5/00

B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl⁷B29B17/00, B09B3/00-5/00, C10B53/00, C10B57/04,
C10L5/46-5/48, C21B5/00

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報 1922-1996

日本国公開実用新案公報 1971-2002

日本国実用新案登録公報 1996-2002

日本国登録実用新案公報 1994-2002

国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)

C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
X Y	JP 2001-232634 A (新日本製鐵株式会社) 2001. 08. 28, 全文, 図1-2 (ファミリーなし)	1-5, 9 6-8
Y	JP 2001-49261 A (新日本製鐵株式会社) 2001. 02. 20, 全文, 図4 (ファミリーなし)	6-8
PX	JP 2001-341131 A (日本鋼管株式会社) 2001. 12. 11, 全文, 図1-5 (ファミリーなし)	1-5, 9

☒ C欄の続きにも文献が列挙されている。☐ パテントファミリーに関する別紙を参照。

* 引用文献のカテゴリー

「A」特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの

「E」国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの

「L」優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す)

「O」口頭による開示、使用、展示等に言及する文献

「P」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献

「T」国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの

「X」特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの

「Y」特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの

「&」同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

12. 06. 02

国際調査報告の発送日

25.06.02

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (ISA/JP)

郵便番号100-8915

東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官 (権限のある職員)

斉藤 信人

印

4D

7614

電話番号 03-3581-1101 内線 3421

C (続き) . 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
A	WO 95/17527 A1 (KLOCKNER STAHL GMBH) 1995. 06. 29, 請求の範囲1-4 & US 57727 27 A & JP 8-507105 A	1-5, 9
A	EP 1083212 A1 (DSM N.V.) 2001. 03. 14, 全文 & NL 1013007 C & JP 2001-172655 A	1-5, 9
A	JP 2000-198992 A (日本鋼管株式会社) 2000. 07. 18, 全文 (ファミリーなし)	1-5, 9